

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant : Hirokazu Yamagata et al.                      Art Unit : Unknown  
Serial No. : New Application                                      Examiner : Unknown  
Filed : May 10, 2001  
Title : A METHOD OF MANUFACTURING A LIGHT EMITTING DEVICE



Commissioner for Patents  
Washington, D.C. 20231

TRANSMITTAL OF PRIORITY DOCUMENT UNDER 35 USC §119

Applicant hereby confirms his claim of priority under 35 USC §119 from the following application(s):

· JP Appl No. 2000-140990 filed May 12, 2000

A certified copy of each application from which priority is claimed is submitted herewith.

Please apply any charges or credits to Deposit Account No. 06-1050.

Respectfully submitted,

Date: \_\_\_\_\_

*May 10, 2001*

*William D. Hare*

William D. Hare  
Reg. No. 44,739

Fish & Richardson P.C.  
601 Thirteenth Street, NW  
Washington, DC 20005  
Telephone: (202) 783-5070  
Facsimile: (202) 783-2331

2

JC868 U.S. PTO  
09/852090  
05/10/01

日本国特許庁  
PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて  
いる事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed  
with this Office.

出願年月日  
Date of Application:

2000年 5月12日

出願番号  
Application Number:

特願2000-140990

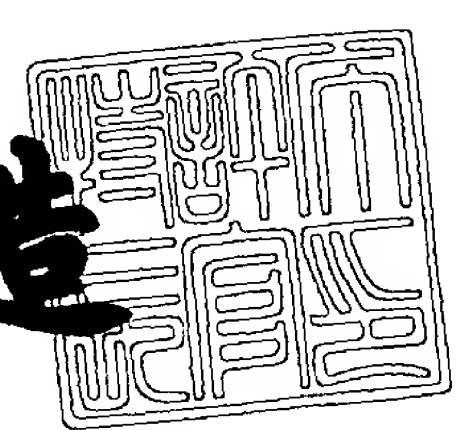
出願人  
Applicant(s):

株式会社半導体エネルギー研究所

2001年 4月 6日

特許庁長官  
Commissioner,  
Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2001-3026079

【書類名】 特許願

【整理番号】 P004920

【提出日】 平成12年 5月12日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H01L 31/12

【発明者】

    【住所又は居所】 神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内

    【氏名】 山形 裕和

【発明者】

    【住所又は居所】 神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内

    【氏名】 高橋 正弘

【特許出願人】

    【識別番号】 000153878

    【氏名又は名称】 株式会社半導体エネルギー研究所

    【代表者】 山崎 舜平

【手数料の表示】

    【予納台帳番号】 002543

    【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

    【物件名】 明細書 1

    【物件名】 図面 1

    【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 発光装置の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

発光性材料およびドーパントからなる第 1 の発光層を蒸着により成膜し、前記発光性材料の蒸着を続けたまま前記ドーパントの蒸着を止めて発光性材料からなる第 2 の発光層を成膜することを特徴とする発光装置の製造方法。

【請求項 2】

発光性材料からなる第 1 の発光層を蒸着により成膜し、前記発光性材料の蒸着を続けたままドーパントを蒸着して発光性材料およびドーパントからなる第 2 の発光層を成膜することを特徴とする発光装置の製造方法。

【請求項 3】

請求項 1 または請求項 2 において、前記第 2 の発光層の上に金属膜を成膜することを特徴とする発光装置の製造方法。

【請求項 4】

請求項 1 乃至請求項 3 のいずれか一において、前記発光性材料とは  $Alq_3$ （トリス-8-キノリノラトアルミニウム錯体）であることを特徴とする発光装置の製造方法。

【請求項 5】

請求項 1 乃至請求項 3 のいずれか一において、前記ドーパントとは蛍光を示す有機材料であることを特徴とする発光装置の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、陽極および陰極の間に EL (Electro Luminescence) が得られる発光性材料からなる薄膜（以下、発光層という）を挟んだ素子（以下、EL 素子という）を有する発光装置に関する。

【0002】

【従来技術】

有機材料からなる発光層を用いた発光装置が低い駆動電圧で発光することをイーストマン・コダック社が発表して以来、有機EL膜を用いた発光装置が注目されている。コダック社の発表では積層型の素子構造とすることで駆動電圧が低下することを特徴としており、各社は積層型の素子構造に関する研究開発を行ってきた。

#### 【0003】

ここで図2に示したのは本発明者らが行った実験の概略であり、本発明を出願する時点において公知の技術ではない。

#### 【0004】

図2において、201はガラス基板、202はITO (Indium Tin Oxide) からなる陽極、203はPAni (ポリアニリン) もしくはPEDOT (ポリチオフェン) からなる正孔注入層、204はSTAD (スピロトリフェニルアミン誘導体) からなる正孔輸送層、205はSDPVB i (スピロジスチリルビフェニル) からなる発光層 (以下、青色発光層という)、206はドーパント (赤色の蛍光を示す有機材料) を添加した $Alq_3$  (トリス-8-キノリノラトアルミニウム錯体) からなる発光層 (以下、赤色発光層という)、207は $Alq_3$  からなる発光層 (以下、緑色発光層という)、208はYb (イッテルビウム) 膜からなる陰極である。

#### 【0005】

このとき本発明者らは $Alq_3$ とドーパントとを共蒸着 (異なる蒸発源から異なる材料を同時に蒸発させて材料を混合する蒸着) により成膜して赤色発光層206を形成し、そこで一旦蒸着を止め、再び $Alq_3$ のみを蒸着して緑色発光層207を形成していた。

#### 【0006】

実際ならば図2に示す積層構造のEL素子は、青色、赤色および緑色が混色されて白色の発光が得られる。ところが、上記本発明者らが行った上記方法では白色発光を得ることができなかった。

#### 【0007】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、発光層を積層した構造を有するE L素子の発光を良好なものとする手段を提供し、そのような発光の良好なE L素子を含む発光装置の製造方法を提供することを課題とする。

## 【 0 0 0 8 】

## 【課題を解決するための手段】

本発明者らは、従来例で示したE L素子の製造方法について様々な検討を重ね、発光層と発光層との間の界面が発光色に大きく影響すると考えた。即ち、発光層から別の発光層へ変化する界面における整合性（連続性）が悪いと白色発光が得られないのではないかと考えた。

## 【 0 0 0 9 】

そこで、本発明者らは、 $Alq_3$ とドーパントとを共蒸着により成膜して赤色発光層206を形成し、 $Alq_3$ の蒸着を続けたままドーパントの蒸着を止め、そのまま $Alq_3$ のみを蒸着して緑色発光層207を形成した。その結果、試作したE L素子からは良好な白色発光を得ることができた。

## 【 0 0 1 0 】

図1に示したグラフは、本発明により得られた白色発光の輝度特性であり、横軸を波長とし、縦軸を輝度（分光放射輝度）としてプロットしている。図1に示すように、波長400～700nmの範囲にブロードな輝度特性が得られており、良好な白色発光が得られていることがわかる。

## 【 0 0 1 1 】

本発明者らはこの現象を鑑みて、発光層を積層した構造を有するE L素子を形成する際は、蒸着を止めることなく連続的に異なる発光層を積層することが望ましいと考えた。特に、発光層を形成する発光性材料は同じものを用いドーパントにより発光色を制御する場合は、ドーパントの蒸着を止めるもしくは始める時にも発光性材料の蒸着を続けることが望ましいと考えた。

## 【 0 0 1 2 】

以上のように、本発明の発光装置の製造方法は、発光性材料およびドーパントからなる発光層を蒸着により成膜し、次に発光性材料の蒸着を続けたままドーパントの蒸着を止めて発光性材料からなる発光層を成膜するという製造方法により

E L 素子を形成する点に特徴がある。

【 0 0 1 3 】

また、本発明の発光装置の製造方法は、発光性材料からなる第 1 の発光層を蒸着により成膜し、次に発光性材料の蒸着を続けたままドーパントを蒸着して発光性材料およびドーパントからなる第 2 の発光層を成膜するという製造方法により E L 素子を形成する点に特徴がある。

【 0 0 1 4 】

このような E L 素子の製造方法を用いることで、良好な発光が得られるパッシブマトリクス型の発光装置もしくはアクティブマトリクス型の発光装置を製造することが可能である。

【 0 0 1 5 】

【発明の実施の形態】

本発明の実施の形態について、以下に示す実施例をもって詳細に説明する。

【 0 0 1 6 】

【実施例】

〔実施例 1〕

本発明の実施例について図 3 ～図 5 を用いて説明する。ここでは、画素部とその周辺に設けられる駆動回路部の T F T を同時に作製する方法について説明する。但し、説明を簡単にするために、駆動回路に関しては基本単位である C M O S 回路を図示することとする。

【 0 0 1 7 】

まず、図 3 ( A ) に示すように、ガラス基板 5 0 0 上に窒化酸化珪素膜からなる下地膜 5 0 1 を 3 0 0 n m の厚さに形成した。この時、窒化酸化珪素膜を二層にし、ガラス基板 5 0 0 に接する方の窒素濃度を 1 0 ～ 2 5 w t % と高めに設定した。

【 0 0 1 8 】

次に下地膜 5 0 1 の上に 5 0 n m の厚さの非晶質珪素膜（図示せず）をプラズマ C V D 法により成膜した。そして、特開平 7 - 1 3 0 6 5 2 号公報に記載の技術に従って非晶質珪素膜を結晶化し、結晶質珪素膜（多結晶シリコン膜若しく

はポリシリコン膜ともいう) 5 0 2 を形成した。(図 3 (A))

【 0 0 1 9 】

次に、図 3 (B) に示すように、結晶質珪素膜 5 0 2 をパターンニングして島状に加工した半導体膜 5 0 3 ~ 5 0 6 を形成した。(図 3 (B))

【 0 0 2 0 】

次に、結晶質珪素膜 5 0 2 上に酸化珪素膜でなる保護膜 5 0 7 を 1 3 0 n m の厚さに形成した。そして、保護膜 5 0 7 を介してボロンを半導体膜 5 0 3 ~ 5 0 6 に添加した。本実施例では質量分離を行わないプラズマドーピング法を用いて添加した。この工程により半導体膜 5 0 3 ~ 5 0 6 中にはボロンが  $1 \times 10^{15} \sim 5 \times 10^{17} \text{ atoms/cm}^3$  の濃度で含まれる。ここで添加されたボロンは T F T のしきい値電圧の調節に用いられる。(図 3 (C))

【 0 0 2 1 】

次に、保護膜 5 0 7 上にレジストマスク 5 0 8 a、5 0 8 b を形成し、保護膜 5 0 7 を介してリンを添加した。本実施例ではプラズマドーピング法を用いて添加した。この工程によりリンが  $2 \times 10^{16} \sim 5 \times 10^{19} \text{ atoms/cm}^3$  の濃度で含まれた半導体領域 (n 型不純物領域) 5 0 9 が形成された。(図 3 (D))

【 0 0 2 2 】

次に、図 3 (E) に示すように、半導体膜 5 0 3 ~ 5 0 6 を覆ってプラズマ C V D 法によりゲート絶縁膜 5 1 0 を形成した。ゲート絶縁膜 5 1 0 としては、1 1 0 n m 厚の窒化酸化珪素膜を用いた。

【 0 0 2 3 】

次に、5 0 n m 厚の窒化タンタル (T a N) 膜と、3 5 0 n m 厚のタンタル (T a) 膜とでなる積層膜を成膜し、これをパターンニングしてゲート電極 5 1 1 ~ 5 1 5 を形成した。この時、ゲート電極 5 1 2 は n 型不純物領域 5 0 9 の一部にゲート絶縁膜 5 1 0 を介して重なるように形成した。

【 0 0 2 4 】

次に、図 4 (A) に示すように、ゲート電極 5 1 1 ~ 5 1 5 をマスクとして自己整合的にリンを  $1 \times 10^{16} \sim 5 \times 10^{18} \text{ atoms/cm}^3$  の濃度で添加した。こうして形成された不純物領域 5 1 6 ~ 5 2 3 には n 型不純物領域 5 0 9 の 1 / 2 ~ 1



／10の濃度でリンが添加される。

【0025】

次に、図4（B）に示すように、ゲート電極511～515をマスクとして自己整合的にゲート絶縁膜507をエッチングした。本実施例では $\text{CHF}_3$ ガスを用いてドライエッチングを行い、ゲート絶縁膜524～528を形成した。

【0026】

次に、図4（C）に示すように、レジストマスク529を形成し、ボロンを $3 \times 10^{20} \sim 3 \times 10^{21} \text{ atoms/cm}^3$ の濃度となるように添加して高濃度にボロンを含む不純物領域530～533を形成した。なお、不純物領域530～533には既にリンが添加されているが、ここで添加されるボロンはその少なくとも300倍以上の濃度で添加される。そのため、予め形成されていたn型の不純物領域は完全にP型に反転し、P型の不純物領域として機能する。

【0027】

次に、図4（D）に示すようにレジストマスク534a～534dを形成し、リンを $1 \times 10^{20} \sim 1 \times 10^{21} \text{ atoms/cm}^3$ の濃度となるように添加して高濃度にリンを含む不純物領域535～539を形成した。なお、不純物領域530～533のうち、540～543で示される領域には同様にリンが添加されるが、p型不純物元素の濃度に比べて十分に低い濃度であるため、p型からn型に反転するようなことはない。

【0028】

次に、レジストマスク534a～534dを除去した後、保護膜544として200nm厚の窒化酸化シリコン膜を形成し、その後、添加されたリンまたはボロンを活性化した。本実施例では電熱炉において窒素雰囲気中、550℃、4時間の熱処理を行った。また、この熱処理の後、水素を含む雰囲気中で350℃で1時間の熱処理を行い水素化処理を行った。（図4（E））

【0029】

次に、図5（A）に示すように、第1層間絶縁膜545を形成した。本実施例では、保護膜544の上に500nm厚の酸化シリコン膜を積層した構造とした。そして、第1層間絶縁膜545に対してコンタクトホールを形成し、ソース配

線 5 4 6 ~ 5 4 9 と、ドレイン配線 5 5 0 ~ 5 5 2 を形成した。なお、本実施例ではこの電極を、チタン膜 6 0 n m、窒化チタン膜 4 0 n m、2 wt% のシリコンを含むアルミニウム膜 3 0 0 n m、チタン膜 1 0 0 n m をスパッタ法で連続形成した四層構造の積層膜とした。

#### 【 0 0 3 0 】

次に、図 5 ( B ) に示すように有機樹脂からなる第 2 層間絶縁膜 5 5 3 を形成した。本実施例ではアクリル樹脂膜を 1 . 5  $\mu$  m の厚さで形成した。そして、第 2 層間絶縁膜 5 5 3 にドレイン配線 5 5 2 に達するコンタクトホールを形成し、酸化物導電膜からなる画素電極 5 5 4 を形成した。本実施例では画素電極 5 5 4 として酸化インジウムと酸化スズとの化合物からなる酸化物導電膜を 1 1 0 n m の厚さに形成した。

#### 【 0 0 3 1 】

次に、画素電極 5 5 4 の表面にオゾン処理を行った。本実施例では、酸素ガス中に晒した状態で紫外光 ( U V 光 ) を照射することで処理を行った。

#### 【 0 0 3 2 】

次に、本発明を実施することにより E L 層 5 5 5 を形成した。本実施例では、P E D O T ( ポリチオフェン ) からなる正孔注入層 ( 2 0 n m 厚 ) 、 S T A D ( スピロートリフェニルアミン誘導体 ) からなる正孔輸送層 ( 2 0 n m 厚 ) 、 S D P V B i ( スピロージスチリルビフェニル ) からなる発光層 ( 1 0 n m 厚 ) 、ドーパントを添加した A l q<sub>3</sub> ( トリス - 8 - キノリノラトアルミニウム錯体 ) からなる発光層 ( 1 0 n m 厚 ) 、 2 0 7 は A l q<sub>3</sub> からなる発光層 ( 3 0 n m 厚 ) を順次形成した積層構造とした。

#### 【 0 0 3 3 】

なお、本実施例ではドーパントを添加した A l q<sub>3</sub> ( トリス - 8 - キノリノラトアルミニウム錯体 ) からなる発光層を形成した後、A l q<sub>3</sub> の蒸着を止めずにドーパントの蒸着のみを止め、A l q<sub>3</sub> からなる発光層を形成した。

#### 【 0 0 3 4 】

次に、金属膜 ( 具体的にはイッテルビウム膜 ) からなる陰極 5 5 9 を蒸着により 4 0 0 n m の厚さに形成した。こうして図 5 ( C ) に示すような構造のアクテ

ィブマトリクス基板が完成した。本実施例では図 5 (C) に示すアクティブマトリクス基板の上に紫外線硬化樹脂膜を塗布し、ガラス基板を張り合わせた後、紫外線硬化樹脂を硬化させて E L 素子を封止した。

#### 【 0 0 3 5 】

さらに、アクティブマトリクス基板にフレキシブルプリントサーキット (F P C) を取り付けて発光装置を完成した。ここで本実施例に従って作製された発光装置の表示画像を図 7 に示す。以上のように、良好な白色発光が得られるアクティブマトリクス型の発光装置を製造することができた。

#### 【 0 0 3 6 】

##### 〔実施例 2〕

本発明の E L 素子の製造方法は、パッシブマトリクス型の発光装置の製造方法に用いることもできる。本発明は公知のパッシブマトリクス型発光装置の製造方法において、E L 素子を形成する部分のみ異なり、発光層を形成する際に本発明に従えば本発明の効果を得ることができる。

#### 【 0 0 3 7 】

##### 〔実施例 3〕

実施例 1 に示したアクティブマトリクス型の発光装置はプレーナ型 T F T で各素子を形成したが、ボトムゲート型 T F T (典型的には逆スタガ型 T F T) で形成しても良い。その際、活性層に結晶質珪素膜を用いても良いし、非晶質珪素膜を用いても良い。このように本発明は E L 素子の製造工程に特徴があり、T F T の構造には限定されない。

#### 【 0 0 3 8 】

##### 〔実施例 4〕

実施例 1 において、赤色発光層に添加するドーパントとしては、公知の赤色の蛍光を示す有機材料を用いることができる。また、赤色の燐光を示す有機材料を用いても良い。

#### 【 0 0 3 9 】

なお、本実施例の構成は、実施例 1 ～実施例 3 のいずれの構成とも組み合わせて実施することができる。

【 0 0 4 0 】

〔実施例 5〕

実施例 1 において、正孔注入層としては、正孔注入層として機能しうる公知の有機材料を用いることができる。

【 0 0 4 1 】

なお、本実施例の構成は、実施例 1 ～実施例 3 のいずれの構成とも組み合わせで実施することができる。

【 0 0 4 2 】

【発明の効果】

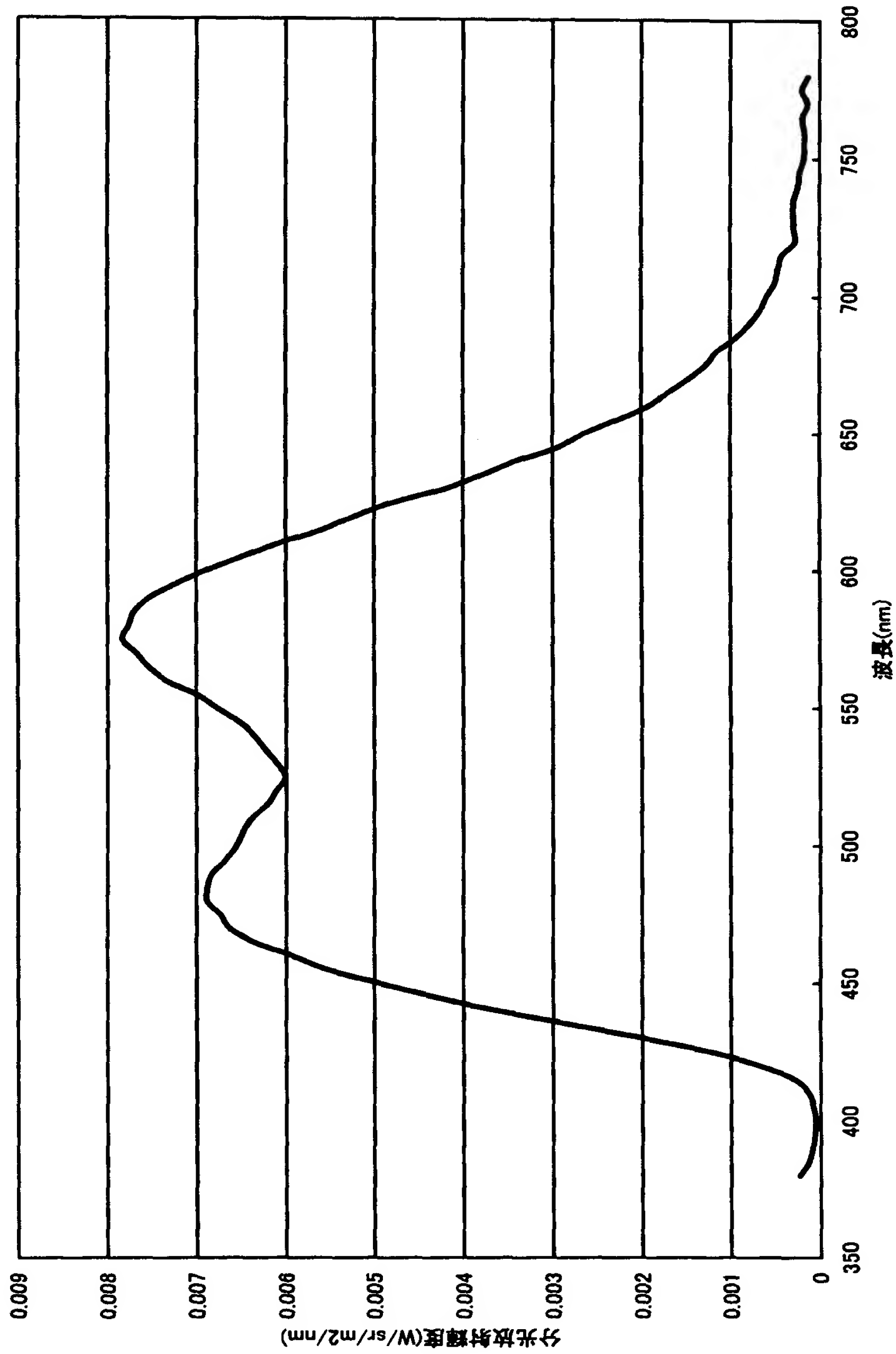
本発明を実施することで良好な白色発光が得られる E L 素子を有した発光装置を製造することができる。

【図面の簡単な説明】

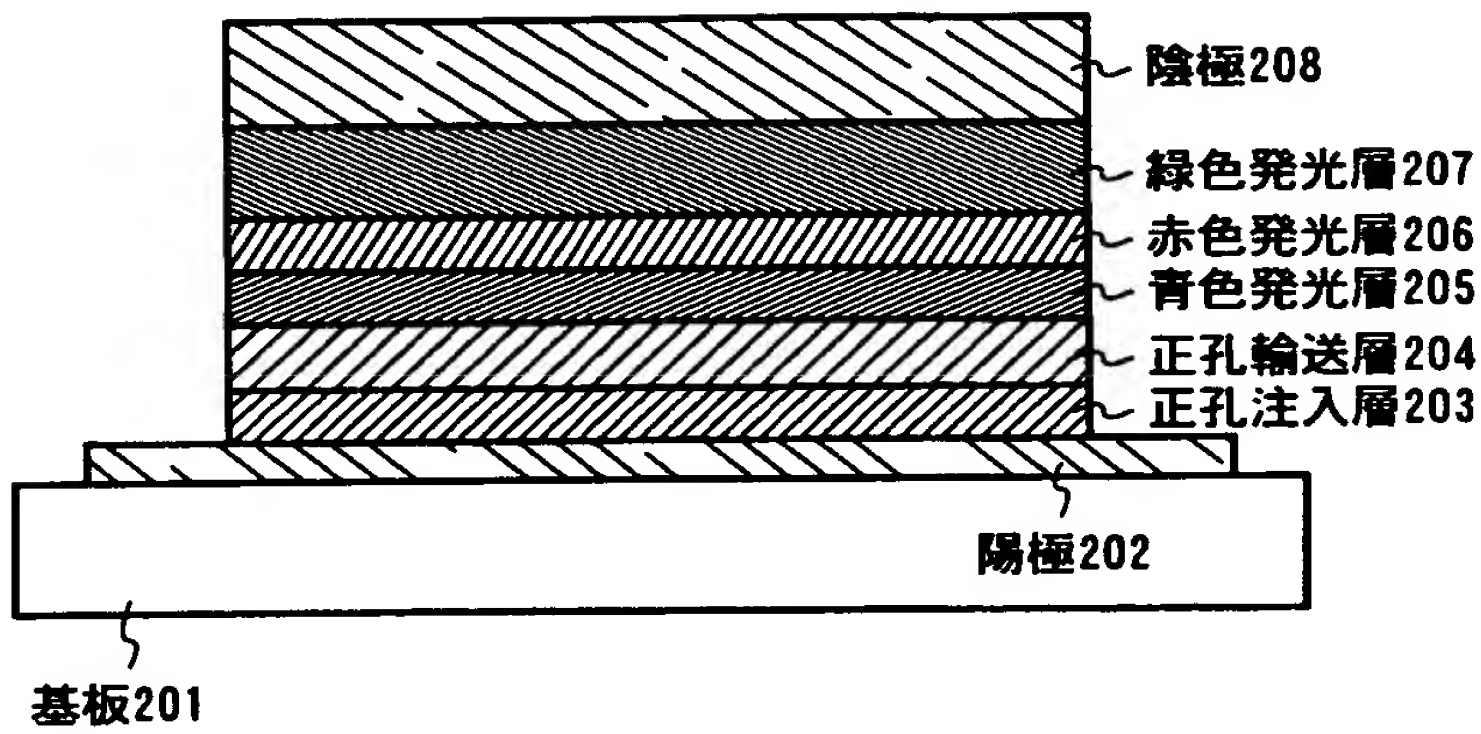
- 【図 1】 E L 素子の輝度特性を示す図。
- 【図 2】 E L 素子の構造を示す図。
- 【図 3】 発光装置の製造方法を示す図。
- 【図 4】 発光装置の製造方法を示す図。
- 【図 5】 発光装置の製造方法を示す図。
- 【図 6】 発光装置の表示画像を示す図面代用写真。

【書類名】 図面

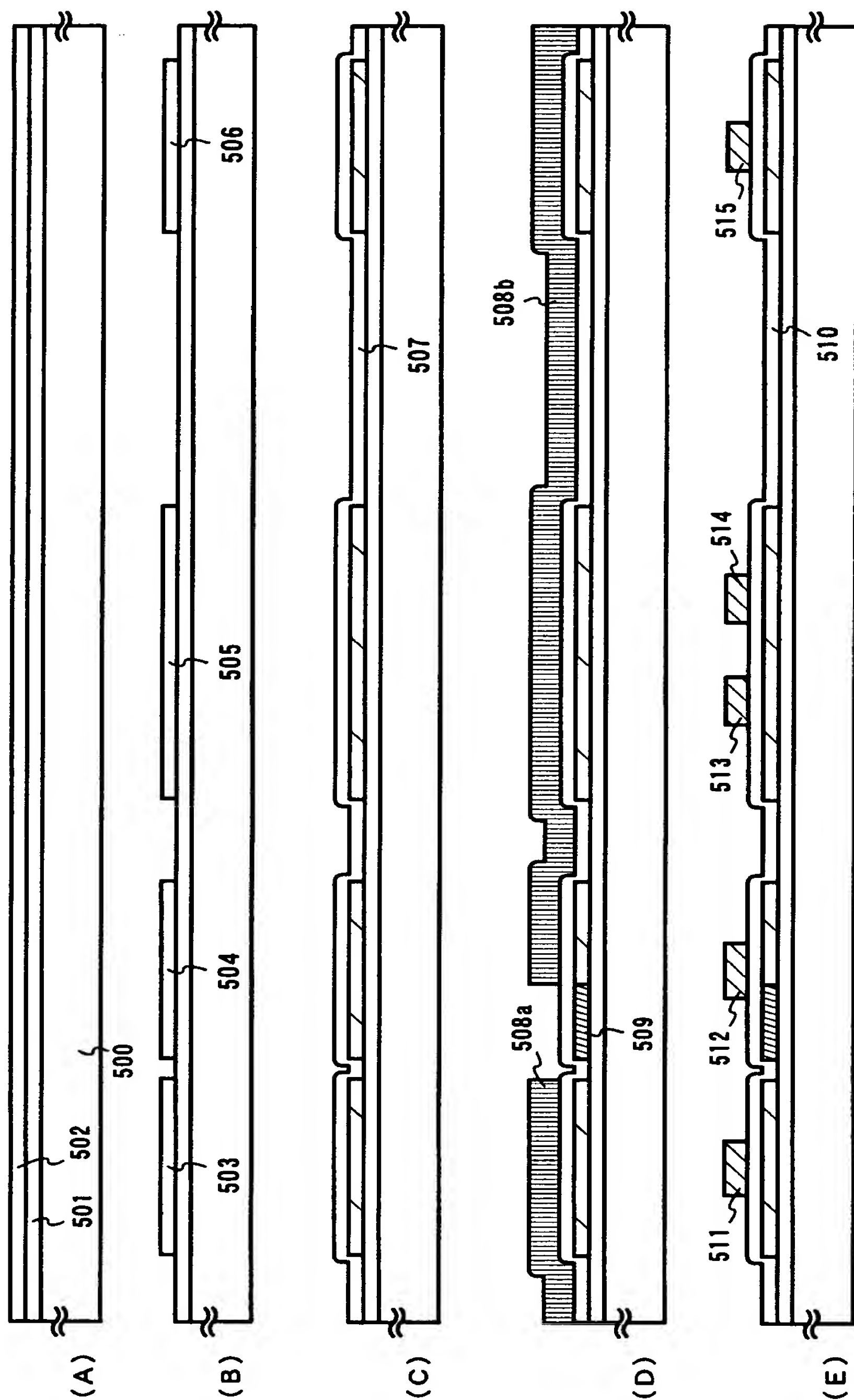
【図 1】



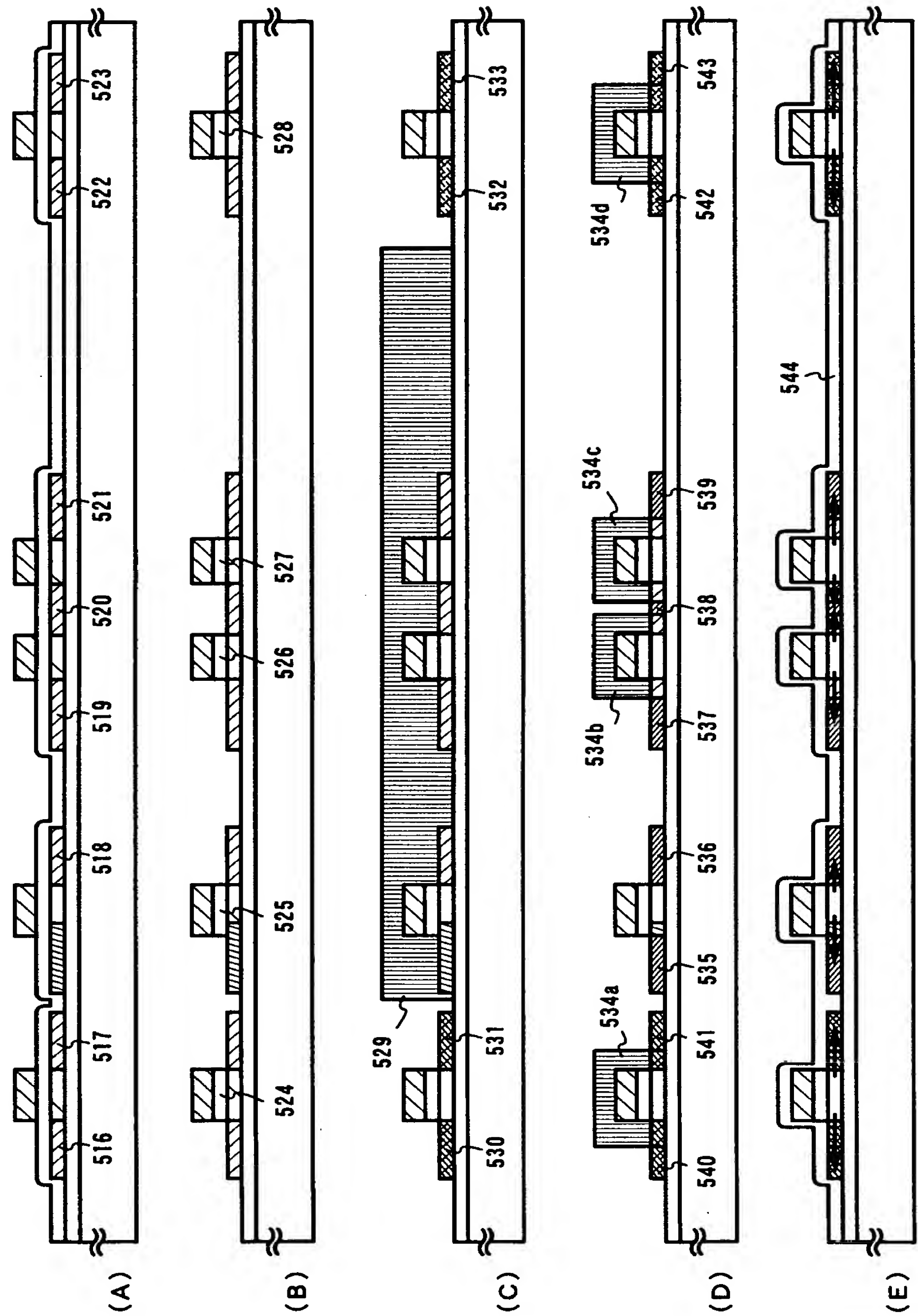
【図 2】



【 図 3 】

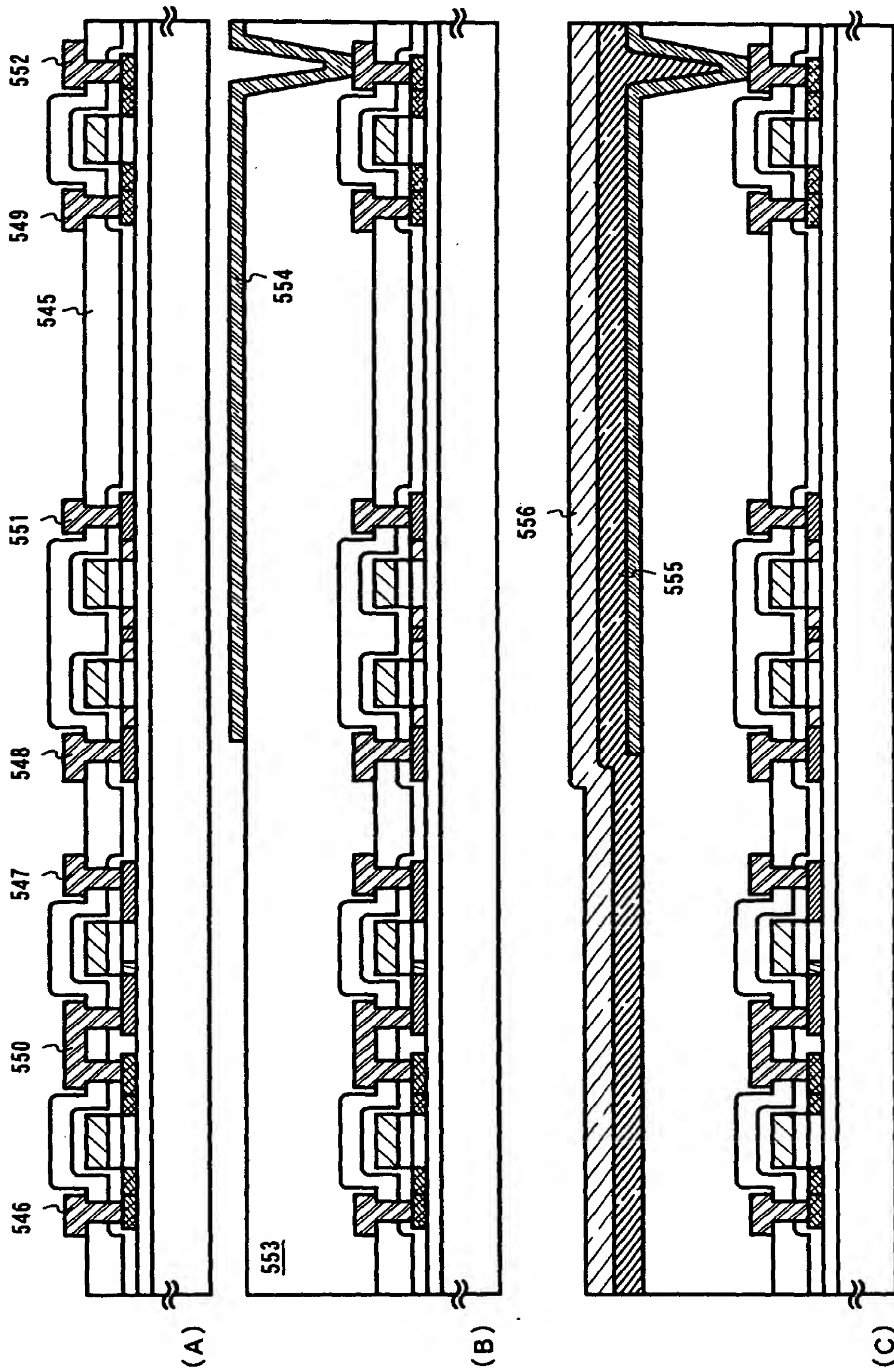


【図 4】

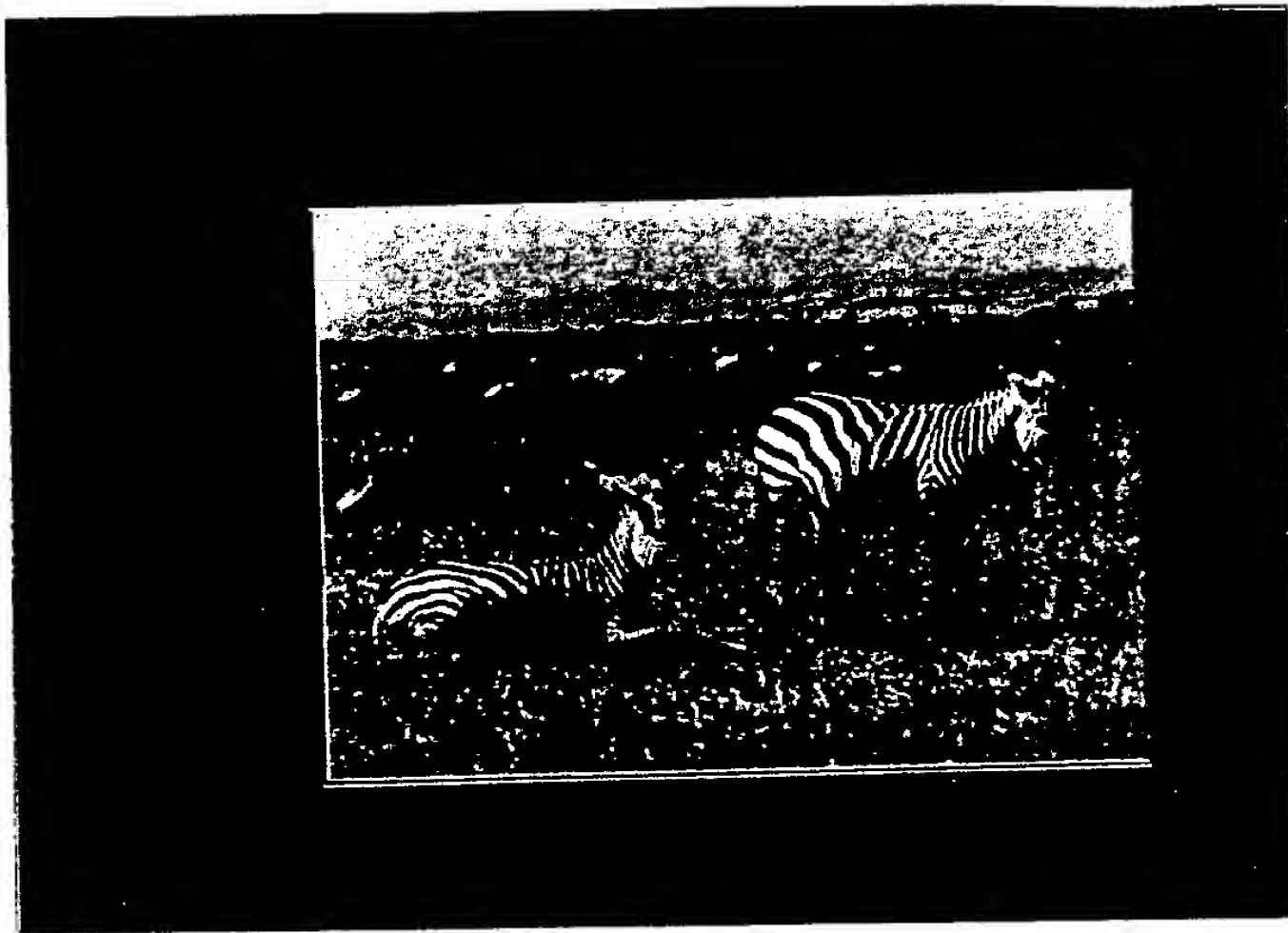




【図 5】



【図 6】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 発光層を積層した構造を有する E L 素子の発光を良好なものとする手段を提供し、発光の良好な E L 素子を含む発光装置の製造方法を提供する

【解決手段】 発光性材料およびドーパントからなる第 1 の発光層を蒸着により成膜し、前記発光性材料の蒸着を続けたまま前記ドーパントの蒸着を止めて発光性材料からなる第 2 の発光層を成膜することを特徴とする。これにより発光層の界面の整合性が高められ、良好な発光が得られる。

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000153878]

1. 変更年月日 1990年 8月17日  
[変更理由] 新規登録  
住 所 神奈川県厚木市長谷398番地  
氏 名 株式会社半導体エネルギー研究所